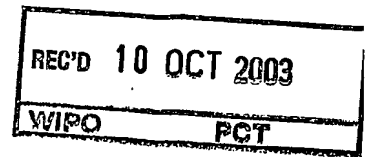


10/524720  
PCT/JP03/10498  
Rec'd PCT/PTO 16 FEB 2005

20.08.03

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE



別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2003年 1月 9日

出 願 番 号  
Application Number: 特願2003-003191  
[ST. 10/C]: [JP2003-003191]

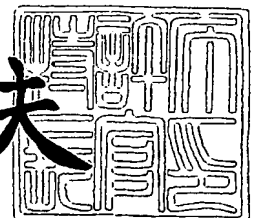
出 願 人  
Applicant(s): 本田技研工業株式会社

**PRIORITY DOCUMENT**  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 9月26日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



Best Available Copy

出証番号 出証特2003-3079293

【書類名】 特許願

【整理番号】 H102358601

【提出日】 平成15年 1月 9日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H01M 8/02

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県狭山市新狭山 1 丁目 1 0 番地 1 ホンダエンジニアリング株式会社内

【氏名】 西 好次

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県狭山市新狭山 1 丁目 1 0 番地 1 ホンダエンジニアリング株式会社内

【氏名】 石黒 顕一

【特許出願人】

【識別番号】 000005326

【氏名又は名称】 本田技研工業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100067356

【弁理士】

【氏名又は名称】 下田 容一郎

【選任した代理人】

【識別番号】 100094020

【弁理士】

【氏名又は名称】 田宮 寛祉

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 004466

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9723773

【包括委任状番号】 0011844

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池用セパレータ

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 電解質膜に沿わせたアノード側電極及びカソード側電極を拡散層を介して両側から挟み込む燃料電池用セパレータにおいて、

この燃料電池用セパレータは、ポリフェニレンサルファイドを 10～34 wt %、黒鉛を 65～80 wt %、およびケッチェンブラックを 1～10 wt % 含んだ混合物で形成したものであることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 2】 電解質膜に沿わせたアノード側電極及びカソード側電極を拡散層を介して両側から挟み込む燃料電池用セパレータにおいて、

この燃料電池用セパレータは、ポリフェニレンサルファイドを 10～34 wt %、黒鉛を 60～80 wt %、ケッチェンブラックを 1～10 wt %、およびチョップド炭素繊維を 5～15 wt % 含んだ混合物で形成したものであることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 3】 前記ポリフェニレンサルファイドは、粘性が 20～80 p s i であることを特徴とする請求項 1 又は請求項 2 記載の燃料電池用セパレータ。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、電解質膜にアノード側電極及びカソード側電極を添わせ、これらを両側から挟持することによりセルモジュールを構成する燃料電池用セパレータに関する。

【0002】

【従来の技術】

燃料電池用のセパレータの組成物として熱可塑性樹脂に炭素繊維やカーボンナノチューブを配合したものが知られている（例えば、特許文献 1 参照。）。

【0003】

【特許文献 1】

特開 2002-97375 公報（第 9 頁、図 1）

## 【0004】

この特許文献1の内容を詳しく説明する。

ここで、セパレータを燃料電池に組み込んだ際に、その両面にガス流路用の溝や冷却水流路用の溝を複数本成形する必要がある。このため、セパレータの素材は成形性に優れたものを使用する必要がある。

加えて、セパレータは電極からの集電機能が要求され、導電性に優れている必要がある。

## 【0005】

この要求を満足させるために、上記特許文献1では、セパレータの組成物として、成形性に優れたポリフェニレンサルファイド（熱可塑性樹脂）を使用するとともに、導電性に優れた炭素繊維やカーボンナノチューブを使用することにした。

一例を詳しく説明すると、セパレータの組成物として炭素繊維を30wt%、カーボンナノチューブを0.5wt%、ポリフェニレンサルファイド（熱可塑性樹脂）を69.5wt%準備し、これらを混合することにより混合物を得た。その後、この混合物を素材としてセパレータを射出成形した。

## 【0006】

熱可塑性樹脂であるポリフェニレンサルファイドを69.5wt%使用することで射出成形性を確保できる。さらに、炭素繊維を30wt%使用するとともに、カーボンナノチューブを0.5wt%使用することである程度の導電性を確保することができる。

## 【0007】

## 【発明が解決しようとする課題】

しかし、上記特許文献1の技術では、素材に多量の炭素繊維を含有しているので、炭素繊維の配向性が顕著に発生し、セパレータは異方性になる。よって、セパレータに反りや変形が発生する虞がある。

また、セパレータのように両面にガス流路用の溝や冷却水流路用の溝がある場合には、ウエルドラインがしやすい。このため、セパレータの強度が極端に低下して破損する虞がある。

## 【0008】

さらに、上記特許文献1の技術では、セパレータの導電性を高めるために、セパレータの素材に炭素繊維やカーボンナノチューブを含有させている。しかし、炭素繊維をセパレータの素材に含有させても、導電性を十分に上げることは難しい。

具体的には、特許文献1では、体積抵抗率を二重リング方式（ASTM D257）で測定している。しかし、二重リング方式は、高抵抗領域の測定に適しており、本発明者の測定結果では、低抵抗領域の測定に適した四探針法と比較して体積抵抗率がかなり低くでることが判った。

加えて、近年燃料電池は高い性能が要求されており、この要求を満足させるために、より導電性に優れたセパレータの実用化が望まれていた。

## 【0009】

そこで、本発明の目的は、強度を高めるとともに、導電性に優れた燃料電池用セパレータを提供することにある。

## 【0010】

## 【課題を解決するための手段】

上記目的を達成するために請求項1は、電解質膜に沿わせたアノード側電極及びカソード側電極を拡散層を介して両側から挟み込む燃料電池用セパレータにおいて、この燃料電池用セパレータは、ポリフェニレンサルファイドを10～34wt%、黒鉛を65～80wt%、およびケッチェンブラックを1～10wt%含んだ混合物で形成したものであることを特徴とする。

## 【0011】

セパレータに熱可塑性樹脂としてのポリフェニレンサルファイドを10～34wt%含ませた。ポリフェニレンサルファイドは成形性に優れ、かつ弾力性に優れた樹脂なので、セパレータを射出成形する際の成形性を高めることができるとともに、シール性に優れたセパレータを得ることができる。

## 【0012】

加えて、ポリフェニレンサルファイドは耐熱性に優れた樹脂なので、セパレータにポリフェニレンサルファイドを含ませることで、セパレータの耐熱性を高め

ることができる。このため、比較的高温の領域で使用する燃料電池への適用が可能になる。

#### 【0013】

ここで、ポリフェニレンサルファイドの含有量を10～34wt%に設定した理由は以下の通りである。

ポリフェニレンサルファイドの含有量が10wt%未満になると、ポリフェニレンサルファイドの含有量が少なすぎて、セパレータの成形性やセパレータの接触面の弾力性、すなわちシール性を確保することが難しくなる。

さらに、含有量が10wt%未満になると、セパレータの耐熱性を確保することや、結合剤として働きを発揮させることが難しい。

#### 【0014】

一方、ポリフェニレンサルファイドの含有量が34wt%を超えると、セパレータに含む黒鉛の含有量が少なくなり、セパレータの導電性を十分に確保することが難しくなる。

そこで、ポリフェニレンサルファイドの含有量を10～34wt%に設定した。

#### 【0015】

さらに、セパレータに黒鉛を65～80wt%含ませることで、導電性を高めることができる。

黒鉛の含有量を65～80wt%に設定した理由は以下の通りである。

黒鉛の含有量が65wt%未満になると、黒鉛の含有量が少なすぎて、セパレータの導電性を高めることが難しくなる。

#### 【0016】

一方、黒鉛の含有量が80wt%を超えると、黒鉛の含有量が多すぎて黒鉛を均一に分散することが難しく、押出成形やプレス成形が困難になる。

そこで、熱可塑性樹脂の含有量を65～80wt%に設定した。

また、黒鉛の含有量を65wt%以上に確保することで、セパレータの体積抵抗率を低減させて、セパレータの導電性を十分に高めることができる。

#### 【0017】

加えて、セパレータにケッチェンブラックを1～10wt%含ませることで、導電性をより一層高めることができる。

ケッチェンブラックは、他のカーボンプラックと比較して特に導電性に優れた部材であり、セパレータにケッチェンブラックを含ませることでセパレータの導電性をより一層高めることができる。

#### 【0018】

ここで、ケッチェンブラックの含有量を1～10wt%に設定した理由は以下の通りである。

ケッチェンブラックの含有量が1wt%未満になると、ケッチェンブラックの含有量が少なすぎて、セパレータの導電性を十分に確保することができない虞がある。

#### 【0019】

一方、ケッチェンブラックの含有量が10wt%を超えると、ケッチェンブラックの含有量が多すぎて混練し難くなる。溶剤を添加することで混練を可能にすることも考えられるが、溶剤を使用することでコストが上がる虞がある。

加えて、溶剤を添加して混練しても、ケッチェンブラックを含んだ混練物は流動性が比較的悪く、例えば成形の際に所定の形状を得ることが難しい。

そこで、ケッチェンブラックの含有量を1～10wt%に設定した。

#### 【0020】

また、セパレータに含ませた黒鉛およびケッチェンブラックは炭素粒子であり、セパレータに繊維質の物質を多量に含ませていない。よって、繊維質の物質によりセパレータに配向性が発生することを抑え、異方性によりセパレータに反りや変形が発生することを防止することができる。

#### 【0021】

さらに、セパレータに繊維質の物質を多量に含ませていないので、セパレータに備えるガス流路用の溝や冷却水流路用の溝に、ウエルドラインが発生してセパレータの強度が低下することを防ぐことができる。

#### 【0022】

請求項2は、電解質膜に沿わせたアノード側電極及びカソード側電極を拡散層



を介して両側から挟み込む燃料電池用セパレータにおいて、この燃料電池用セパレータは、ポリフェニレンサルファイドを10～34wt%、黒鉛を60～80wt%、ケッチェンブラックを1～10wt%、およびチョップド炭素繊維を5～15wt%含んだ混合物で形成したものであることを特徴とする。

#### 【0023】

セパレータにポリフェニレンサルファイドを10～34wt%、黒鉛を60～80wt%、およびケッチェンブラックを1～10wt%含ませることで、請求項1と同様の効果を得ることができる。

加えて、セパレータにチョップド炭素繊維を5～15wt%含ませることで、セパレータの強度や耐熱性を高めることができる。

#### 【0024】

ここで、チョップド炭素繊維の含有量を5～15wt%に設定した理由は以下の通りである。

チョップド炭素繊維の含有量が5wt%未満になると、チョップド炭素繊維の含有量が少なすぎて、セパレータの強度や耐熱性を確保することが難しくなる。

#### 【0025】

一方、チョップド炭素繊維の含有量が15wt%を超えると、セパレータに含むチョップド炭素繊維の含有量が多すぎてチョップド炭素繊維の配向性が顕著に発生し、セパレータは異方性になる。よって、セパレータに反りや変形が発生する虞がある。

#### 【0026】

また、セパレータのように両面にガス流路用の溝や冷却水流路用の溝がある場合には、ウエルドラインができやすい。このため、セパレータの強度が極端に低下して破損する虞がある。

そこで、チョップド炭素繊維の含有量を5～15wt%に設定した。

#### 【0027】

請求項3は、ポリフェニレンサルファイドは、粘性が20～80psiであることを特徴とする。

#### 【0028】

ポリフェニレンサルファイドの粘性を20～80 p s iとすることで、ポリフェニレンサルファイドに黒鉛などを良好に混錬できるので、セパレータの成形性をより一層高めることができる。

#### 【0029】

ここで、ポリフェニレンサルファイドの粘性を20～80 p s iに設定した理由は以下の通りである。

ポリフェニレンサルファイドの粘性が20 p s i未満になると、粘性が低すぎてポリフェニレンサルファイドが固化せず、スラリー状になってしまう。

#### 【0030】

一方、ポリフェニレンサルファイドの粘性が80 p s iを超えると、ポリフェニレンサルファイドの粘性が高すぎてポリフェニレンサルファイドに黒鉛などを良好に混錬することができない。

そこで、ポリフェニレンサルファイドの粘性を20～80 p s iに設定した。

#### 【0031】

##### 【発明の実施の形態】

本発明の実施の形態を添付図に基づいて以下に説明する。なお、図面は符号の向きに見るものとする。

図1は本発明に係る燃料電池用セパレータを使用した燃料電池を示す分解斜視図である。

燃料電池10は、一例として電解質膜12に固体高分子電解質を使用し、この電解質膜12にアノード側電極13及びカソード側電極14を添わせ、アノード側電極13側にアノード側電極拡散層15を介してセパレータ18を合わせるとともに、カソード側電極14側にカソード側電極拡散層16を介してセパレータ（燃料電池用セパレータ）18を合わせることによりセルモジュール11を構成し、このセルモジュール11を多数個積層した固体高分子型燃料電池である。

#### 【0032】

セパレータ18は、第1セパレータ20と、第2セパレータ30とからなり、第1セパレータ20の冷却水通路形成面20aと第2セパレータ30の接合面30aを接合したものである。

## 【0033】

このように、第1、第2セパレータ20、30を接合することにより、第1セパレータ20の冷却水通路用溝21...を第2セパレータ30で覆い、冷却水通路22...（図2に示す）を形成する。

この冷却水通路22...には、第1、第2セパレータ20、30の上端中央の冷却水供給孔部23a、33aが連通するとともに、第1、第2セパレータ20、30の下端中央の冷却水排出孔部23b、33bが連通する。

## 【0034】

第1セパレータ20は、燃料ガス通路形成面20b側に燃料ガス通路用溝24...（図2に示す）を備え、燃料ガス通路形成面20bにアノード側電極拡散層15を重ね合わせることで、燃料ガス通路用溝24...をアノード側電極拡散層15で塞いで燃料ガス通路25...（図2に示す）を形成する。

この燃料ガス通路25...に、第1、第2セパレータ20、30の上端左側の燃料ガス供給孔部26a、36aを連通するとともに、第1、第2セパレータ20、30の下端右側の燃料ガス排出孔部26b、36bを連通する。

## 【0035】

第2セパレータ30は、酸化剤ガス通路形成面30b側に酸化剤ガス通路用溝37...を備え、酸化剤ガス通路形成面30bにカソード側電極拡散層16を重ね合わせることで、酸化剤ガス通路用溝37...をカソード側電極拡散層16で塞いで酸化剤ガス通路38...（図2に示す）を形成する。

この酸化剤ガス通路38...に、第1、第2セパレータ20、30の上端右側の酸化剤ガス供給孔部29a、39aを連通するとともに、第1、第2セパレータ20、30の下端左側の酸化剤ガス排出孔部29b、39bを連通する。

## 【0036】

第1、第2セパレータ20、30は、ポリフェニレンサルファイドを10～34wt%、黒鉛を60～80wt%、ケッチェンブラックを1～10wt%、およびチョップド炭素繊維を5～15wt%含んだ混合物で形成したものである。

## 【0037】

第1、第2セパレータ20、30に熱可塑性樹脂としてのポリフェニレンサル

ファイドを 10～34 wt % 含ませた。ポリフェニレンサルファイドは成形性に優れ、かつ弾力性に優れた樹脂なので、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 を射出成形する際の成形性を高めることができるとともに、シール性に優れた第 1、第 2 セパレータ 20, 30 を得ることができる。

これにより、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 の生産性や精度をより一層高めることができる。

#### 【0038】

加えて、ポリフェニレンサルファイドは耐熱性に優れた樹脂なので、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 にポリフェニレンサルファイドを含ませることで、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 の耐熱性を高めることができる。

このため、比較的高温の領域で使用する燃料電池への適用が可能になり、用途の拡大を図ることができる。

#### 【0039】

ここで、ポリフェニレンサルファイドの含有量を 10～34 wt % に設定した理由は以下の通りである。

ポリフェニレンサルファイドの含有量が 10 wt % 未満になると、ポリフェニレンサルファイドの含有量が少なすぎて、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 の成形性や第 1、第 2 セパレータ 20, 30 の接触面の弾力性、すなわちシール性を確保することが難しくなる。

さらに、含有量が 10 wt % 未満になると、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 の耐熱性を確保することや、結合剤として働きを発揮させることが難しい。

#### 【0040】

一方、ポリフェニレンサルファイドの含有量が 34 wt % を超えると、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 に含む黒鉛の含有量が少なくなり、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 の導電性を十分に確保することが難しくなる。

そこで、熱可塑性樹脂の含有量を 10～34 wt % に設定して、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 の成形性、シール性、耐熱性や結合性を確保するとともに、十分な導電性を確保することにした。

#### 【0041】

さらに、第1、第2セパレータ20、30に黒鉛を60～80wt%含ませることで、導電性を高めることができる。

黒鉛の含有量を60～80wt%に設定した理由は以下の通りである。

黒鉛の含有量が60wt%未満になると、黒鉛の含有量が少なすぎて、第1、第2セパレータ20、30の導電性を高めることが難しくなる。

#### 【0042】

一方、黒鉛の含有量が80wt%を超えると、黒鉛の含有量が多すぎて黒鉛を均一に分散することが難しく、押出成形やプレス成形が困難になる。

そこで、熱可塑性樹脂の含有量を60～80wt%に設定して、第1、第2セパレータ20、30の導電性を確保するとともに、成形性を確保することにした。

#### 【0043】

また、黒鉛の含有量を60wt%以上に確保することで、第1、第2セパレータ20、30の体積抵抗率( $m\Omega \cdot cm$ )を低減させて、第1、第2セパレータ20、30の導電性を十分に高めることができる。

#### 【0044】

一方、ポリフェニレンサルファイドの含有量が34wt%を超えると、第1、第2セパレータ20、30に含む黒鉛の含有量が少なくなり、第1、第2セパレータ20、30の導電性を十分に確保することが難しくなる。

そこで、熱可塑性樹脂の含有量を10～34wt%に設定して、第1、第2セパレータ20、30の成形性、シール性、耐熱性や結合性を確保するとともに、十分な導電性を確保することにした。

#### 【0045】

加えて、第1、第2セパレータ20、30にケッチェンブラックを1～10wt%含ませることで、導電性をより一層高めることができる。

ケッチェンブラックは、他のカーボンブラックと比較して特に導電性に優れた部材であり、第1、第2セパレータ20、30にケッチェンブラックを含ませることで第1、第2セパレータ20、30の導電性をより一層高めることができる。

## 【0046】

ここで、ケッチェンブラックの含有量を1～10wt%に設定した理由は以下の通りである。

ケッチェンブラックの含有量が1wt%未満になると、ケッチェンブラックの含有量が少なすぎて、第1、第2セパレータ20、30の導電性を十分に確保することができない虞がある。

## 【0047】

一方、ケッチェンブラックの含有量が10wt%を超えると、ケッチェンブラックの含有量が多すぎて混練しづらくなる。溶剤を添加することで混練を可能にすることも考えられるが、溶剤を使用することでコストが上がる虞がある。

加えて、溶剤を添加して混練できたとしても、ケッチェンブラックを含んだ混練物は流動性が比較的悪く、例えば成形の際に所定の形状を得ることが難しい。

そこで、ケッチェンブラックの含有量を1～10wt%に設定することで、第1、第2セパレータ20、30の導電性を十分に確保し、さらに混練の容易化を図るとともに成形性を好適に確保することにした。

## 【0048】

また、第1、第2セパレータ20、30に含ませた黒鉛およびケッチェンブラックは炭素粒子であり、セパレータに繊維質の物質を多量に含ませていない。よって、繊維質の物質によりセパレータに配向性が発生することを抑え、異方性により第1、第2セパレータ20、30に反りや変形が発生することを防止することができる。

## 【0049】

また、第1、第2セパレータ20、30に繊維質の物質を多量に含ませていないので、第1、第2セパレータ20、30に備えるガス流路用の溝や冷却水流路用の溝に、ウエルドラインが発生して第1、第2セパレータ20、30の強度が低下することを防ぐことができる。

## 【0050】

加えて、第1、第2セパレータ20、30にチョップド炭素繊維を5～15wt%含ませることで、第1、第2セパレータ20、30の強度や耐熱性を高める

ことができる。

#### 【0051】

ここで、チョップド炭素繊維の含有量を 5 ~ 15 w t % に設定した理由は以下の通りである。

チョップド炭素繊維の含有量が 5 w t % 未満になると、チョップド炭素繊維の含有量が少なすぎて、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 の強度や耐熱性を確保することが難しくなる。

#### 【0052】

一方、チョップド炭素繊維の含有量が 15 w t % を超えると、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 に含むチョップド炭素繊維の含有量が多すぎてチョップド炭素繊維の配向性が顕著に発生し、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 は異方性になる。よって、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 に反りや変形が発生する虞がある。

#### 【0053】

また、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 のように両面にガス流路用の溝や冷却水流路用の溝がある場合には、ウエルドラインがしやすい。このため、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 の強度が極端に低下して破損する虞がある。

そこで、チョップド炭素繊維の含有量を 5 ~ 15 w t % に設定して、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 の強度や耐久性を確保することにした。

#### 【0054】

ここで、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 に含ませたポリフェニレンサルファイドは、粘性を 20 ~ 80 p s i に設定したものである。

#### 【0055】

ポリフェニレンサルファイドの粘性を 20 ~ 80 p s i に設定した理由は以下の通りである。

ポリフェニレンサルファイドの粘性が 20 p s i 未満になると、粘性が低すぎて第 1、第 2 セパレータ 20, 30 の製造の際に、ポリフェニレンサルファイドが固化せず、スラリー状になってしまう。

#### 【0056】

一方、ポリフェニレンサルファイドの粘性が 80 p s i を超えると、ポリフェ

ニレンサルファイドの粘性が高すぎて第1、第2セパレータ20、30の製造の際に、ポリフェニレンサルファイドに黒鉛などを良好に混練することができない。

そこで、ポリフェニレンサルファイドの粘性を20～80 psiに設定することで、ポリフェニレンサルファイドに黒鉛などを良好に混練できるようにして、セパレータの成形性をより一層高めることにした。

#### 【0057】

なお、ポリフェニレンサルファイドの粘性の測定は、300℃においてMFR（メルトマスフローレイト）の試験方法（ASTM D1238）計で測定したものである。

ここで、MFRとは、鉛直の金属シリンダ内にポリフェニレンサルファイドを充填し、このポリフェニレンサルファイドをおもりを載せたピストンで押圧してシリンダ先端のダイから押し出し、この際にピストンが所定距離移動する移動時間を測定し、この測定値に基づいて粘性を求める方法をいう。

#### 【0058】

図2は図1の2-2線断面図である。

第1セパレータ20は、図1に示すように略矩形状に形成した部材で、冷却水通路形成面20aに冷却水通路用溝21...を多数本条備え、燃料ガス通路形成面（接触面）20bに燃料ガス通路用溝24...を多数本条備える。

#### 【0059】

第1セパレータ20に、ポリフェニレンサルファイドを10～34wt%含ませた。これにより、第1セパレータ20の成形性、シール性、耐熱性や結合性を確保するとともに、十分な導電性を確保することができる。

#### 【0060】

ここで、第1セパレータ20に含むチョップド炭素繊維は弾性率が高いので、チョップド炭素繊維の含有量が多すぎると、冷却水通路用溝21...を形成するリブ40...内や、燃料ガス通路用溝24...を形成するリブ41...内にチョップド炭素繊維が入りきらず、チョップド炭素繊維とポリフェニレンサルファイドとの分離が起きやすくなる。



## 【0061】

このため、リブ40…，41…はポリフェニレンサルファイドの含有量が他の部位と比較して多くなり、本来の性能を発揮することができなく虞がある。

そこで、チョップド炭素繊維の含有量を5～15wt%に抑えた。これにより、リブ40…，41…内にチョップド炭素繊維を好適に入り込ませて、リブ40…，41…を良好に形成することができる。

## 【0062】

図3は図1の3-3線断面図である。

第2セパレータ30は、図1に示すように略矩形状に形成した部材で、接合面30aを平坦に形成し、酸化剤ガス通路形成面（接触面）30bに酸化剤ガス通路用溝37…を多数本条備える。

## 【0063】

第2セパレータ30に、ポリフェニレンサルファイドを10～34wt%含ませた。これにより、第1セパレータ20の成形性、シール性、耐熱性や結合性を確保するとともに、十分な導電性を確保することができる。

ここで、第1セパレータ20と同様に、第2セパレータ30も、チョップド炭素繊維の含有量を5～15wt%に抑えたので、リブ42…内にチョップド炭素繊維を好適に入り込ませて、リブ42…を良好に形成することができる。

## 【0064】

図4は本発明に係る燃料電池用セパレータを示す断面図である。

セパレータ18は、第1セパレータ20の冷却水通路形成面20aと、第2セパレータ30の接合面30aとを接合し、第1セパレータ20の冷却水通路用溝21を第2セパレータ30で塞いで冷却水通路22を形成したものである。

燃料ガス通路形成面20bにアノード側電極拡散層15を合わせることで、燃料ガス通路用溝24…及びアノード側電極拡散層15で燃料ガス通路25…を形成する。

## 【0065】

このセパレータ18は、チョップド炭素繊維を5～15wt%含んでいるので、強度、弾性率、耐熱性をさらに高めることができる。セパレータ18の強度を

上げることで、燃料電池にセパレータ 18 を組み込む際の締付け強度を高めることができる。

さらに、セパレータ 18 の弾性率や耐熱性を上げることで、高温時の耐ガス圧性やクリープ強度を高めることができるので、高温領域でも燃料電池を好適に使用することができる。

#### 【0066】

次に、図 5 において、体積抵抗率  $\rho_v$  の求め方を説明する。

図 5 は体積抵抗率の求め方を説明した図であり、試料 50（幅を  $W$ 、高さを  $t$ 、長さを  $L$ ）の体積抵抗率  $\rho_v$  を四探針法（ASTM D991）で求める例について説明する。

断面積が（ $W \times t$ ）の一端 51 から他端 52 に矢印の如く一定電流  $I$  を流し、距離  $L$  だけ離れた一端 51 側の電極と他端 52 側の電極との電極間の電位差  $V$  を四探針法で測定する。

測定した電位差  $V$  に基づいて次式で体積抵抗率  $\rho_v$  を求める。

$$\text{体積抵抗率 } \rho_v = (V / I) \times (W / L) \times t$$

#### 【0067】

ここで、四探針法を採用する理由を説明する。

電位差  $V$  を測定する際に、試料 50 の一定電流  $I$  を流すと、試料 50 の一端 51 と電流電極との間に界面現象により接触抵抗と呼ばれる電圧降下が生じる。この接触抵抗の影響で抵抗  $\Omega$ （ $V / I$ ）が高く測定される。

#### 【0068】

そこで、四探針法を採用することで、接触抵抗を排除し、試料 50 の真の体積抵抗率  $\rho_v$  を求めることができる。

なお、電位差  $V$  を測定する方法として、四探針法の他に二重リング方式（ASTM D257）も知られている。

#### 【0069】

しかし、二重リング方式は、高抵抗領域の測定に適しており、本発明者の測定結果でも、四探針法と比較して体積抵抗率がかなり低くでることが判った。

以下、表 2 に基づいて四探針法（ASTM D991）および二重リング法（

ASTM D257) で求めた体積抵抗率について説明する。

【0070】

【表1】

			密度	テスト1	テスト2
配 合 組 成	ポリフェニレン	粘性 60 p s i	1. 3 5	1 5 w t %	1 2. 5 w t %
	サルファイド	粘性 20 p s i	1. 3 5	1 5 w t %	1 2. 5 w t %
	可塑剤 (ポリマータイプ)		0. 9 5	—	2. 5 w t %
	黒鉛		2. 3	6 9 w t %	6 9 w t %
	ケッチェンブラック		1. 8	1 w t %	1 w t %
	チョップド炭素繊維 (P A N系)		1. 7 5	—	2. 5 w t %
配合組成物の流動性 (スパイラル・フロー・レシオ)					
体積 抵抗率	四探針法 (A S T M D 9 9 1)			3 0	4 5
	二重リング法 (A S T M D 2 5 7)			0. 5 7 m Ω ・ c m 0. 1 5 5 m Ω ・ c m	0. 3 3 m Ω ・ c m 0. 0 7 2 m Ω ・ c m

## 【0071】

表1に示すように、テスト1の試験片は、ポリフェニレンサルファイド（粘性60 p s i）を15 w t %、ポリフェニレンサルファイド（粘性20 p s i）を15 w t %、黒鉛（粒径100  $\mu$  m）を69 w t %およびケッチェンブラックを1 w t %含んだものである。

この混合物の流動性は、スパイラル・フロー・レシオが30である。

## 【0072】

テスト2の試験片は、ポリフェニレンサルファイド（粘性60 p s i）を12.5 w t %、ポリフェニレンサルファイド（粘性20 p s i）を12.5 w t %、可塑剤（ポリマータイプ）を2.5 w t %、黒鉛（粒径100  $\mu$  m）を69 w t %、ケッチェンブラックを1 w t %およびPAN系チョップド炭素繊維を2.5 w t %含んだものである。

この混合物の流動性は、スパイラル・フロー・レシオが45である。

## 【0073】

スパイラル・フロー・レシオは、スパイラル・フロー試験で求めたレシオである。スパイラル・フロー試験とは、金型に形成した狭くて長い螺旋状の溝に、射出成形機で溶融樹脂を射出し、螺旋状の溝に流入した溶融樹脂の流入長から成形性を判断する試験をいう。

## 【0074】

テスト1の試験片およびテスト2の試験片の体積抵抗率を四探針法と二重リング法とで求めた。

二重リング法で求めた体積抵抗率は、テスト1が0.155 m  $\Omega$  · c m、テスト2が0.072 m  $\Omega$  · c mであった。

一方、四探針法で求めた体積抵抗率は、テスト1が0.57 m  $\Omega$  · c m、テスト2が0.33 m  $\Omega$  · c mであった。

このように、高抵抗領域に適した二重リング法で低抵抗領域の体積抵抗率を求めると、四探針法と比較してかなり低くでることが判った。そこで、信頼性を高めるために体積抵抗率を四探針法で求めることにした。

## 【0075】

次に、四探針法で求めた黒鉛およびケッチェンブラックのそれぞれの含有量と体積抵抗率との関係を図6および図7で説明する。

図6は黒鉛の含有量と体積抵抗率との関係を示したグラフであり、縦軸は体積抵抗率 ( $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ ) を示し、横軸は黒鉛の含有量 ( $\text{wt}\%$ ) を示す。

黒鉛の含有量が0のとき、体積抵抗率は約  $150000 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  であるが、黒鉛の含有量が  $60 \text{ wt}\%$  以上になると体積抵抗率は小さくなることが判る。

よって、黒鉛の含有量が  $60 \text{ wt}\%$  以上になるように、好ましくは  $65 \text{ wt}\%$  以上になるように設定した。

#### 【0076】

図7はケッチェンブラックの含有量と体積抵抗率との関係を示したグラフであり、縦軸は体積抵抗率 ( $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ ) を示し、横軸はケッチェンブラックの含有量 ( $\text{wt}\%$ ) を示す。

ケッチェンブラックの含有量が0のとき、体積抵抗率は約  $3400 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  であるが、ケッチェンブラックの含有量が  $1 \text{ wt}\%$  になると体積抵抗率は約  $500 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  まで下がる。

#### 【0077】

さらに、ケッチェンブラックの含有量が2になると、体積抵抗率は約  $300 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  になり、ケッチェンブラックの含有量が  $3 \text{ wt}\%$  になると体積抵抗率は極めて小さくなることが判る。

よって、ケッチェンブラックの含有量が  $1 \text{ wt}\%$  以上になるように設定した。

#### 【0078】

次に、実施例1～3および比較例1～2を表2に基づいて説明する。

セパレータ18に含有させるポリフェニレンサルファイドは、一例として出光石油化学株式会社製のものを使用し、黒鉛は、一例として日本黒鉛工業株式会社製のものを使用した。

また、ケッチェンブラックは、一例としてケッチェン・ブラック・インターナショナル株式会社製のEC600JD (商品名) を使用し、チョップド炭素繊維は、一例として東レ株式会社製のPAN系のものを使用した。

#### 【0079】

なお、ケッチェン・ブラック・インターナショナル株式会社製の EC 6 0 0 J D（商品名）は、通常のケッチェンブラックと比較して約 6 0 % の含有量で同等の導電性を確保できる高級グレードの高導電性カーボンブラックである。

また、東レ株式会社製のチョップド炭素繊維は、直径  $d$  が  $7\ \mu\text{m}$ 、長さが  $3\ \text{m}$  の炭素繊維である。

【 0 0 8 0 】

【表 2】

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1	比較例 2
配 合 組 成	ポリフェニレン サルファイド 33.25wt% (粘度 45psi)	30wt% (粘度 45psi)	25wt% (粘度 45psi)	35wt% (粘度 80psi)	35wt% (粘度 80psi)
	黒 鉛 60wt% (粒径 100 $\mu$ m)	63wt% (粒径 100 $\mu$ m)	67wt% (粒径 100 $\mu$ m)	58wt% (粒径 100 $\mu$ m)	62wt% (粒径 100 $\mu$ m)
	ケッチェン ブラック 2.85wt% (EC600JD)	2wt% (EC600JD)	3wt% (EC600JD)	2wt% (EC600JD)	3wt% (EC600JD)
	チヨップド 炭素繊維 5wt% (PAN系)	5wt% (PAN系)	5wt% (PAN系)	5wt% (PAN系)	—
配合組成物の流動性 (スバイラル・フロー・レシオ)	40	45	60	62	50
体積抵抗率	72m $\Omega$ ・cm	85m $\Omega$ ・cm	60m $\Omega$ ・cm	330m $\Omega$ ・cm	98m $\Omega$ ・cm
判 定	○	○	○	X	X

・ポリフェニレンサルファイド : 出光石油化学(株)製  
・黒鉛 : 日本黒鉛工業(株)製  
・ケッチェンブラック : ケッチェン・ブラック・インターナショナル(株)製  
・チヨップド炭素繊維 : 東レ(株)製

【0081】

表 2 に示すように、実施例 1 は、ポリフェニレンサルファイド（粘性 45 p s i）を 33.25 w t %、黒鉛（粒径 100  $\mu$  m）を 60 w t %、ケッチェンブラックを 2.85 w t %、およびチョップド炭素繊維を 5 w t % 含んだものである。なお、この混合物の流動性は、スパイラル・フロー・レシオが 40 である。

#### 【0082】

実施例 2 は、ポリフェニレンサルファイド（粘性 45 p s i）を 30 w t %、黒鉛（粒径 100  $\mu$  m）を 63 w t %、ケッチェンブラックを 2 w t %、およびチョップド炭素繊維を 5 w t % 含んだものである。なお、この混合物の流動性は、スパイラル・フロー・レシオが 45 である。

#### 【0083】

実施例 3 は、ポリフェニレンサルファイド（粘性 45 p s i）を 25 w t %、黒鉛（粒径 100  $\mu$  m）を 67 w t %、ケッチェンブラックを 3 w t %、およびチョップド炭素繊維を 5 w t % 含んだものである。なお、この混合物の流動性は、スパイラル・フロー・レシオが 60 である。

#### 【0084】

比較例 1 は、ポリフェニレンサルファイド（粘性 80 p s i）を 35 w t %、黒鉛（粒径 100  $\mu$  m）を 58 w t %、ケッチェンブラックを 2 w t %、およびチョップド炭素繊維を 5 w t % 含んだものである。なお、この混合物の流動性は、スパイラル・フロー・レシオが 62 である。

#### 【0085】

比較例 2 は、ポリフェニレンサルファイド（粘性 80 p s i）を 35 w t %、黒鉛（粒径 100  $\mu$  m）を 62 w t %、ケッチェンブラックを 3 w t % 含んだものである。なお、この混合物の流動性は、スパイラル・フロー・レシオが 50 である。

#### 【0086】

実施例 1～3 および比較例 1～2 の試料を準備した後、図 5 で説明した四探針法でそれぞれの試料の体積抵抗率を求めた。

ここで、体積抵抗率が 90 m  $\Omega$  · c m 以下であれば、セパレータ 18（図 1 参照）に採用した際に十分な導電性を確保することができるとの見通しから、体積



抵抗率のしきい値を  $90 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  とし、求めた体積抵抗値が  $90 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  以下の場合を評価○とし、求めた体積抵抗値が  $90 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  を超えた場合を評価×とした。

#### 【0087】

その結果、実施例1は体積抵抗率が  $72 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  と  $90 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  以下に抑えることができたので、評価は○である。

また、実施例2は体積抵抗率が  $85 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  と  $90 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  以下に抑えることができたので、評価は○である。

さらに、実施例3は体積抵抗率が  $60 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  と  $90 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  以下に抑えることができたので、評価は○である。

#### 【0088】

一方、比較例1は体積抵抗率が  $330 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  と  $90 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  を超えてしまうので、評価は×である。

また、比較例2は体積抵抗率が  $98 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  と  $90 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  を超えてしまうので、評価は×である。

#### 【0089】

なお、混合物の流動性は、成形性を考慮すると、スパイラル・フロー・レシオで30以上を確保する必要がある、好ましくは40以上であることが望ましい。

実施例1～実施例3および比較例1～2は、混合物の流動性がスパイラル・フロー・レシオで40以上であるので、一例として射出成形が可能であった。

#### 【0090】

次に、第2実施形態について説明する。

第1実施形態では、第1、第2セパレータ20、30に、ポリフェニレンサルファイドを10～34wt%、黒鉛を60～80wt%、ケッチェンブラックを1～10wt%、およびチョップド炭素繊維を5～15wt%含ませた例について説明したが、第1、第2セパレータ20、30に、ポリフェニレンサルファイドを10～34wt%、黒鉛を65～80wt%、およびケッチェンブラックを1～10wt%含ませることも可能である。

## 【0091】

第1、第2セパレータ20、30にポリフェニレンサルファイドを10～34wt%含ませることで、第1、第2セパレータ20、30を射出成形する際の成形性を高めることができるとともに、シール性に優れた第1、第2セパレータ20、30を得ることができる。

これにより、第1、第2セパレータ20、30の生産性や精度をより一層高めることができる。

## 【0092】

加えて、ポリフェニレンサルファイドは耐熱性に優れた樹脂なので、第1、第2セパレータ20、30にポリフェニレンサルファイドを含ませることで、第1、第2セパレータ20、30の耐熱性を高めることができる。このため、比較的高温の領域で使用する燃料電池への適用が可能になり、用途の拡大を図ることができる。

ここで、ポリフェニレンサルファイドの含有量を10～34wt%に設定した理由は、第1実施形態と同様である。

## 【0093】

また、セパレータに黒鉛を65～80wt%含ませることで、導電性を高めることができる。

黒鉛の含有量を65～80wt%に設定した理由は、第1実施形態と同様である。

すなわち、黒鉛の含有量が65wt%未満になると、黒鉛の含有量が少なすぎて、第1、第2セパレータ20、30の導電性を高めることが難しくなる。

## 【0094】

一方、黒鉛の含有量が80wt%を超えると、黒鉛の含有量が多すぎて黒鉛を均一に分散することが難しく、押出成形やプレス成形が困難になる。

そこで、熱可塑性樹脂の含有量を65～80wt%に設定して、第1、第2セパレータ20、30の導電性を確保するとともに、成形性を確保することにした。

## 【0095】

また、黒鉛の含有量を 65 wt % 以上に確保することで、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 の体積抵抗率 ( $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ ) を低減させて、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 の導電性を十分に高めることができる。

#### 【0096】

さらに、セパレータにケッチェンブラックを 1 ~ 10 wt % 含ませることで、導電性をより一層高めることができる。

ケッチェンブラックの含有量を 1 ~ 10 wt % に設定した理由は、第 1 実施形態と同様である。

第 2 実施形態の第 1、第 2 セパレータ 20, 30 によれば、第 1 実施形態と同様の効果を得ることができる。

#### 【0097】

なお、前記実施形態の第 1、第 2 セパレータ 20, 40 は、押出し成形やプレス成形で連続的に成形することが可能であり、さらに加熱プレス方法、射出成形方法やトランスファー成形方法などの製造方法で成形することが可能である。

トランスファー成形方法とは、成形材料をキャビティとは別のポット部に 1 ショット分入れ、プランジャーによって溶融状態の材料をキャビティに移送して成形する方法である。

#### 【0098】

また、前記実施形態では、第 1、第 2 セパレータ 20, 30 に含ませたポリフェニレンサルファイドの粘性を 20 ~ 80 psi に設定した例について説明したが、ポリフェニレンサルファイドの粘性が 80 psi より高い場合には、可塑剤を使用して対応することも可能である。

#### 【0099】

さらに、前記実施形態では、粒径が  $100 \mu\text{m}$  の黒鉛を使用する例について説明したが、黒鉛の粒径は  $100 \mu\text{m}$  に限るものではなく、その他の粒径を使用することも可能である。

#### 【0100】

加えて、前記実施形態では、ケッチェンブラックを、一例としてケッチェン・ブラック・インターナショナル株式会社製（販売元；三菱化学株式会社）の「E

C600JD」を使用した例について説明したが、これに限らないで、例えばケッチェン・ブラック・インターナショナル株式会社製の「EC」を使用することも可能であり、その他のケッチェンブラックを使用することも可能である。

さらに、ケッチェンブラックと同様に導電性に優れたカーボンブラックであれば、ケッチェンブラックに代えて使用することも可能である。

#### 【0101】

また、前記実施形態では、PAN系のチョップド炭素繊維を使用する例について説明したが、これに限らないで、例えばピッチ系のチョップド炭素繊維を使用することも可能である。

#### 【0102】

##### 【発明の効果】

本発明は上記構成により次の効果を発揮する。

請求項1は、セパレータに熱可塑性樹脂としてのポリフェニレンサルファイドを10～34wt%含ませた。ポリフェニレンサルファイドは成形性に優れ、かつ弾力性に優れた樹脂なので、セパレータを射出成形する際の成形性を高めることができるとともに、シール性に優れたセパレータを得ることができる。これにより、セパレータの生産性や精度をより一層高めることができる。

#### 【0103】

加えて、ポリフェニレンサルファイドは耐熱性に優れた樹脂なので、セパレータにポリフェニレンサルファイドを含ませることで、セパレータの耐熱性を高めることができる。このため、比較的高温の領域で使用する燃料電池への適用が可能になり、用途の拡大を図ることができる。

そこで、ポリフェニレンサルファイドの含有量を10～34wt%に設定して、セパレータの成形性、シール性、耐熱性や結合性を確保するとともに、十分な導電性を確保することにした。

#### 【0104】

また、黒鉛の含有量を65～80wt%に設定して、セパレータの導電性を確保するとともに、成形性を確保することにした。

さらに、黒鉛の含有量を65wt%以上に確保することで、セパレータの体積

抵抗率を低減させて、セパレータの導電性を十分に高めることができる。

加えて、セパレータにケッチェンブラックを1～10wt%含ませることで、導電性をより一層高めることができる。

#### 【0105】

請求項2は、セパレータにポリフェニレンサルファイドを10～34wt%、黒鉛を60～80wt%、およびケッチェンブラックを1～10wt%、セパレータにチョップド炭素繊維を5～15wt%含ませることで、請求項1と同様の効果を得ることができ、加えてセパレータの強度や耐熱性を高めることができる。

#### 【0106】

請求項3は、ポリフェニレンサルファイドの粘性を20～80psiとすることで、ポリフェニレンサルファイドに黒鉛などを良好に混練できるので、セパレータの成形性をより一層高めることができる。

#### 【0107】

ポリフェニレンサルファイドの粘性が20psi未満になると、ポリフェニレンサルファイドが固化せずスラリー状になってしまい、粘性が80psiを超えると、ポリフェニレンサルファイドに黒鉛などを良好に混練することができない。

そこで、ポリフェニレンサルファイドの粘性を20～80psiに設定して、ポリフェニレンサルファイドに黒鉛などを良好に混練できるようにし、かつセパレータの成形性をより一層高めるようにした。

#### 【図面の簡単な説明】

##### 【図1】

本発明に係る燃料電池用セパレータを使用した燃料電池を示す分解斜視図

##### 【図2】

図1の2-2線断面図

##### 【図3】

図1の3-3線断面図

##### 【図4】

本発明に係る燃料電池用セパレータを示す断面図

【図 5】

体積抵抗率の求め方を説明した図

【図 6】

黒鉛の含有量と体積抵抗率との関係を示したグラフ

【図 7】

ケッチェンブラックの含有量と体積抵抗率との関係を示したグラフ

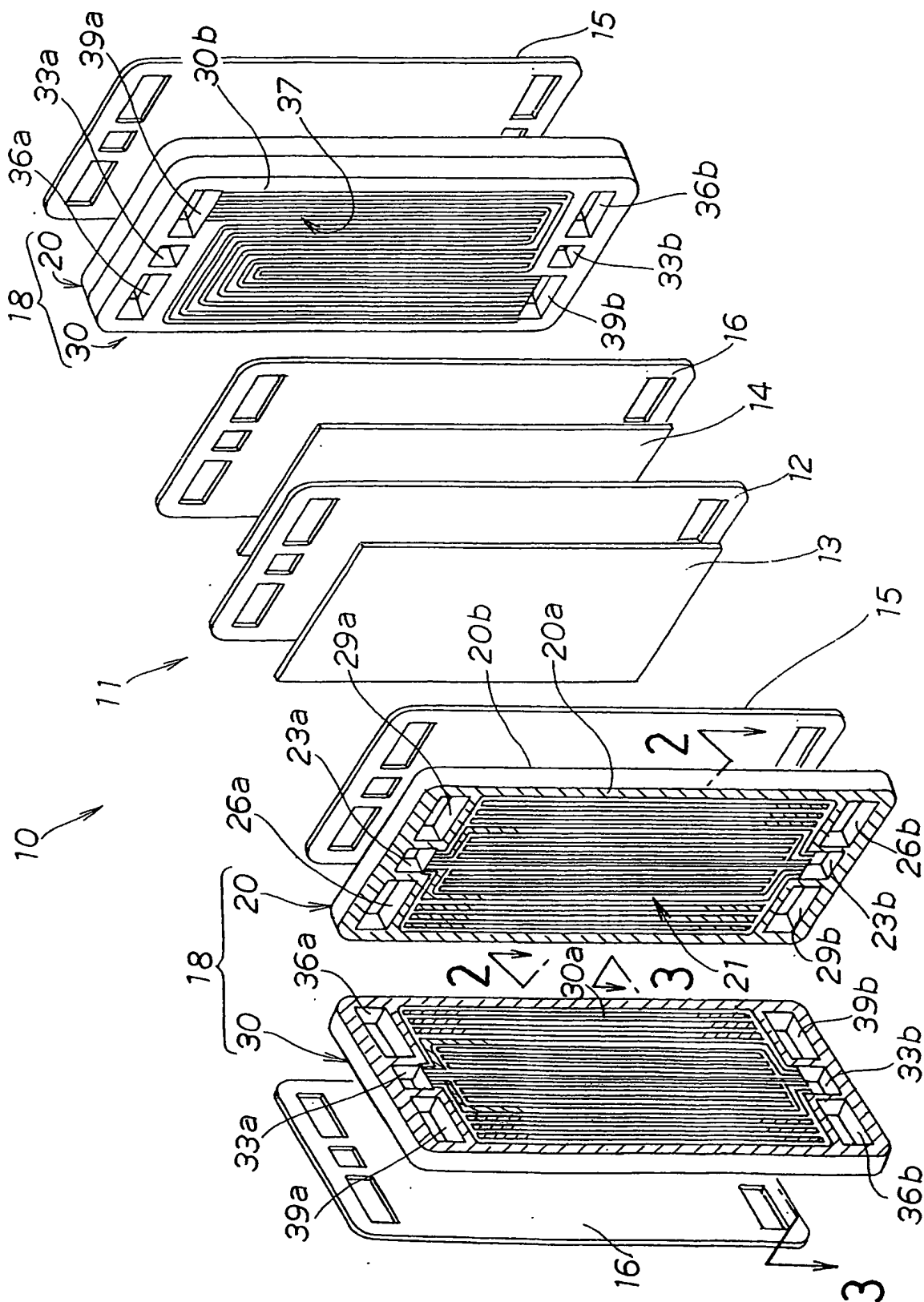
【符号の説明】

1 0…燃料電池、1 2…電解質膜、1 3…アノード側電極、1 4…カソード側電極、1 5…アノード側電極拡散層（拡散層）、1 6…カソード側電極拡散層（拡散層）、1 8…セパレータ（燃料電池用セパレータ）、2 0…第 1 セパレータ、3 0…第 2 セパレータ。

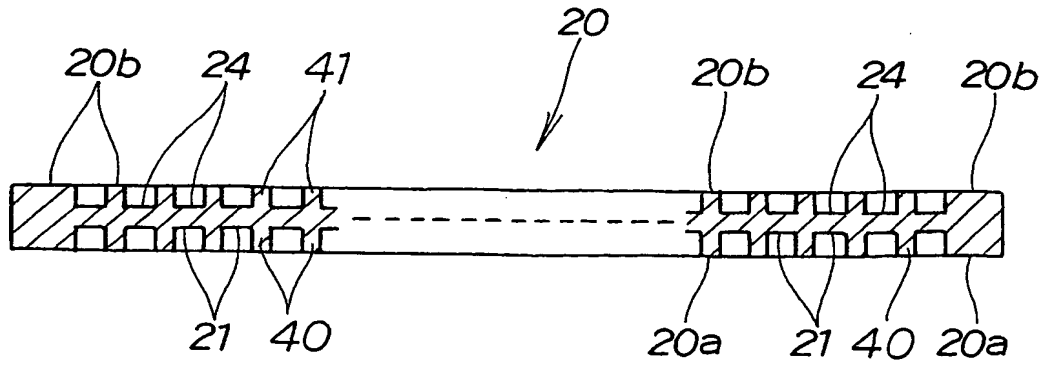
【書類名】

図面

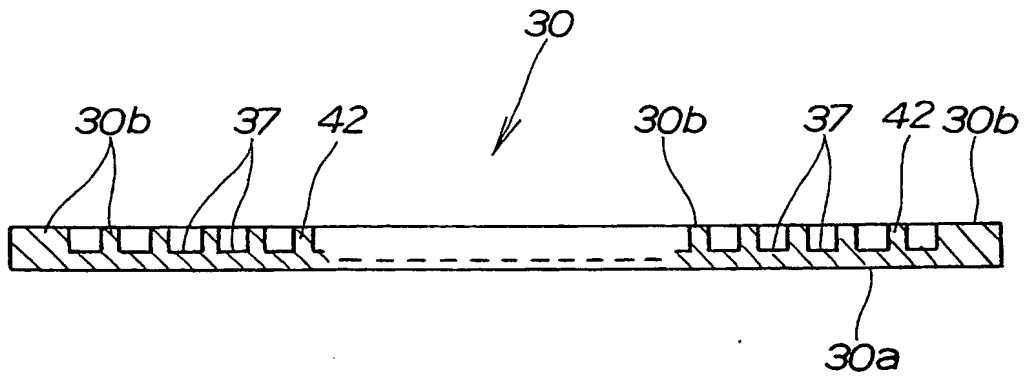
【図 1】



【図 2】

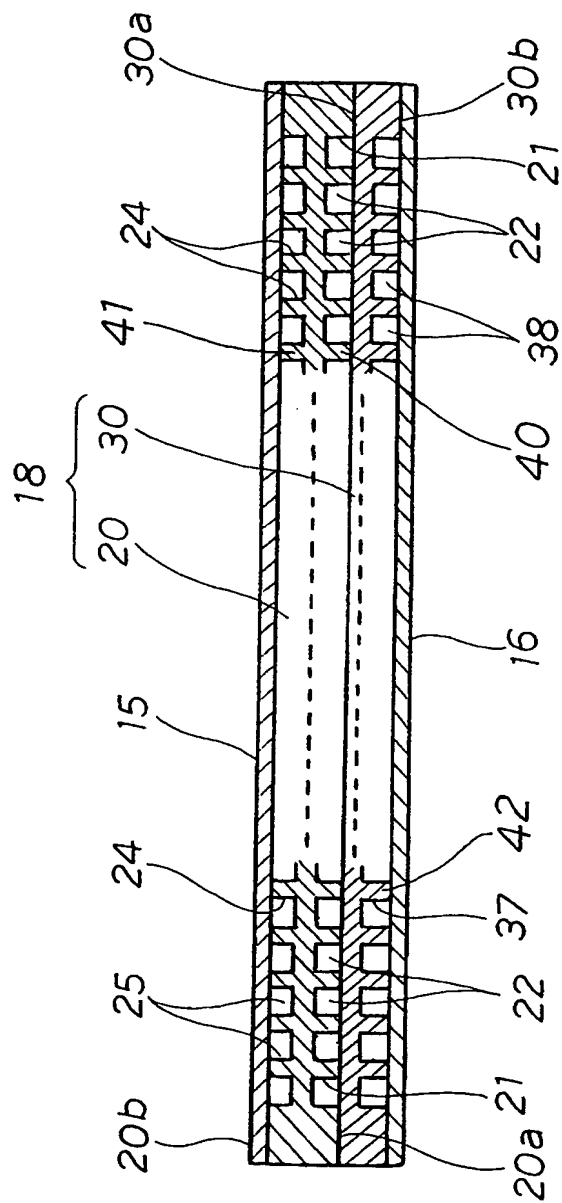


【図 3】

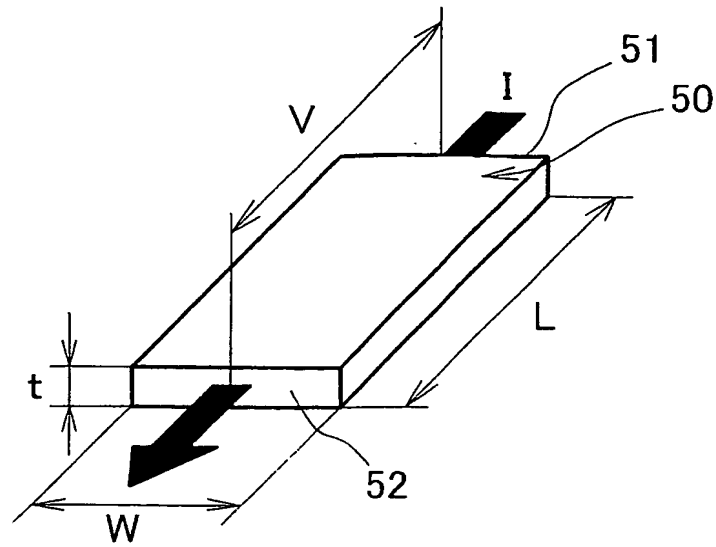




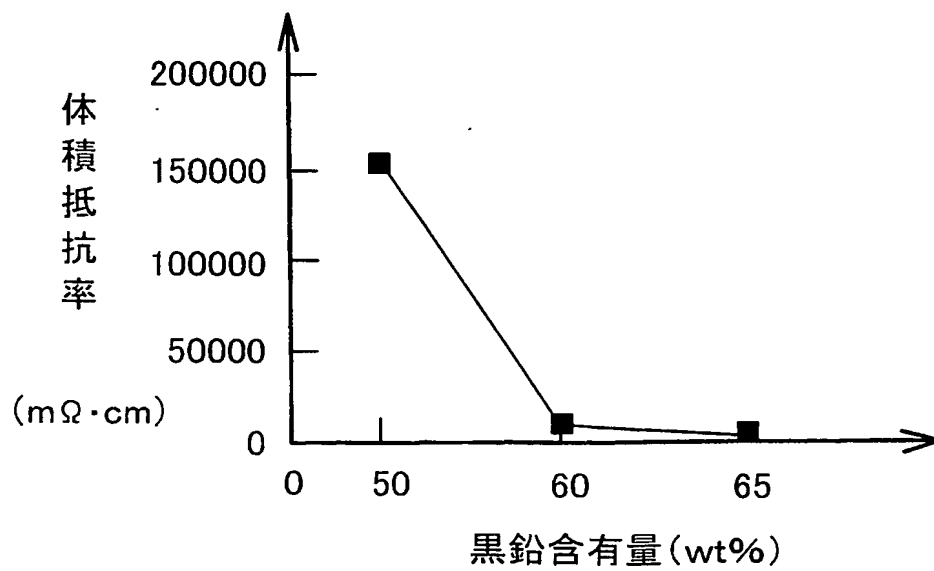
【図 4】



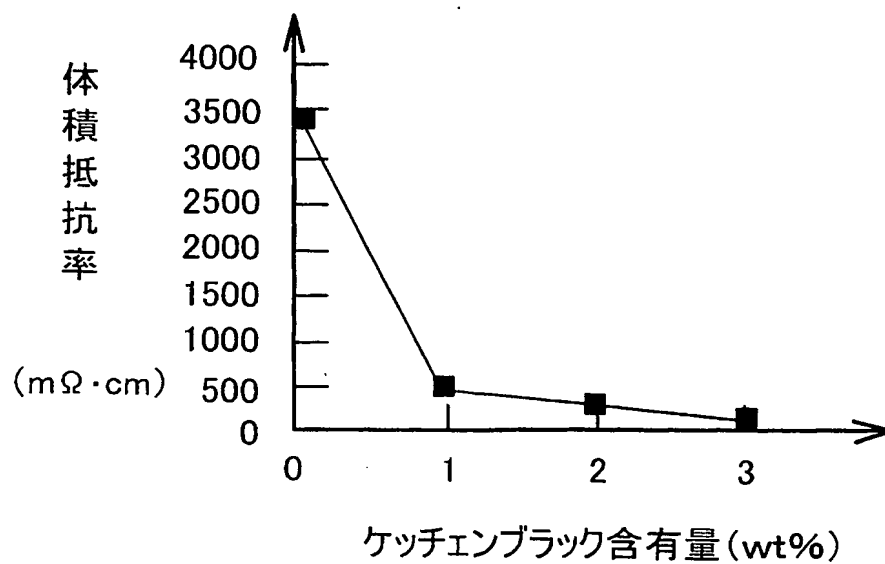
【図 5】



【図 6】



【図 7】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 強度を高めるとともに、導電性に優れた燃料電池用セパレータを提供する。

【解決手段】 燃料電池用セパレータ 18 は、電解質膜 12 に沿わせたアノード側電極 13 及びカソード側電極 14 を拡散層 15, 16 を介して両側から挟み込むものである。この燃料電池用セパレータ 18 は、ポリフェニレンサルファイドを 10～34 wt %、黒鉛を 60～80 wt %、ケッチェンブラックを 1～10 wt %、およびチョップド炭素繊維を 5～15 wt % 含んだ混合物で形成したものである。

【選択図】 図 1

特願 2003-003191

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000005326]

1. 変更年月日  
[変更理由]

1990年 9月 6日  
新規登録

住 所  
氏 名

東京都港区南青山二丁目1番1号  
本田技研工業株式会社